



(19)

(11) Publication number:

01020258 A

Generated Document.

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(21) Application number: 62176308

(51) Intl. Cl.: C08L 59/00

(22) Application date: 15.07.87

(30) Priority:

(43) Date of application
publication: 24.01.89(84) Designated
contracting states:

(71) Applicant: ASAHI CHEM IND CO LTD

(72) Inventor: KOMATSU TAMIKUNI
TERADA JUNICHI

(74) Representative:

(54) MOLDING MATERIAL
COMPRISING POLYACETAL
SOLID SOLUTION

(57) Abstract:

PURPOSE: To obtain the title molding material which can be easily subjected to molecular orientation and can give a molding excellent in strength and modulus, comprising a specified crystalline high-MW polymer comprising a solid solution of a polyacetal homopolymer and a polyacetal copolymer.

CONSTITUTION: A polyacetal homopolymer (A) which is a thermoplastic polymer of a number-average MW of 15,000W200,000 and an MI of 0.1\$50 is obtained by, for example, polymerizing formaldehyde in the presence of an ionic polymerization initiator. A polyacetal copolymer (B) which is a polyoxymethylene copolymer having at least one kind of a (poly)acetal segment in the molecular chain, a number-average MW of 10,000W200,000 and an MI of 0.1W50 is obtained by, for example, copolymerizing a cyclic ether with at least one alkylene oxide. Component A is mixed with 0.1W30wt.% component B, and the mixture is melt-molded to obtain the tile molding material comprising a solid solution which is a thermally homogeneous crystalline high-MW polymer comprising a crystalline phase substantially composed of spherulites of a size $\leq 5\mu\text{m}$ and an amorphous phase.

BEST AVAILABLE COPY

⑫ 公開特許公報(A)

昭64-20258

⑪ Int.Cl.⁴
C 08 L 59/00識別記号
LMP庁内整理番号
7019-4J

⑬ 公開 昭和64年(1989)1月24日

審査請求 未請求 発明の数 1 (全9頁)

⑭ 発明の名称 ポリアセタール固溶体から成る成形材料

⑮ 特 願 昭62-176308

⑯ 出 願 昭62(1987)7月15日

⑰ 発 明 者 小 松 民 邦 静岡県富士市蚊島2番地の1 旭化成工業株式会社内
⑱ 発 明 者 寺 田 淳 一 静岡県富士市蚊島2番地の1 旭化成工業株式会社内
⑲ 出 願 人 旭化成工業株式会社 大阪府大阪市北区堂島浜1丁目2番6号
⑳ 代 理 人 弁理士 阿 形 明

明 細 書

1. 発明の名称 ポリアセタール固溶体から成る成形材料

2. 特許請求の範囲

- 1 ポリアセタールホモポリマーと、ポリアセタールコポリマーとの固溶体から成る成形材料。
- 2 実質的に5 μ m以下の大きさをもつ球晶で構成された結晶相と非晶相とから成る熱的に均一な結晶性高分子重合体である特許請求の範囲第1項記載の成形材料。

3. 発明の詳細な説明

産業上の利用分野

本発明は新規なポリアセタール固溶体から成る成形材料に関するものである。さらに詳しくいえば、本発明は、分子配向体、射出成形体、押出成形体、ロール成形体、フィルム成形体、薄膜成形体などの各種成形体用の成形材料として、特に高

強度及び高弾性率の分子配向体用の成形材料として好適なポリアセタール固溶体から成る成形材料に関するものである。

従来の技術

ポリアセタールは、ポリオキシメチレンとも呼ばれる熱可塑性樹脂であつて、硬さ、剛性、強度などが比較的高く、かつ耐衝撃性、耐久性、耐熱性、耐薬品性、耐クリープ性などに優れ、また良好な表面光沢を有することから、機械部品、パイプ、自動車部品、構造物、各種容器などの素材として広く用いられている。しかしながら、近年成形材料に対する要求特性は益々高まる傾向にあり、ポリアセタールについてもその物性の改良について種々の研究が行われ、特に、ポリアセタールについて外部応力を加えて、高度に分子配向させると、引張弾性率や引張強度などが著しく向上することが見い出されて以来、分子配向が容易で、より良好な強度や弾性率などが得やすいポリアセタールの開発が試みられている。

例えば高密度ポリエチレン、ポリプロピレン、

ポリアセタールなどの結晶性高分子重合体を、融点又は融点以上の温度から、毎分1000℃以上の冷却速度で結晶化温度以下まで急冷することによつて、光学顕微鏡で観察できないほどに微小な結晶が均一に分布した等方性の高分子重合体を生成させ、次いで高倍率に延伸することにより、通常の冷却速度で得られるものに比べて、延伸倍率及び引張弾性率を向上させる方法が提案されている(特公昭57-37454号公報)。

しかしながら、この方法は冷却速度に依存するものであつて、該冷却速度は高分子重合体の厚みと熱伝導性に左右されるので、肉薄の成形体の場合にのみ、効果的であるが、肉厚の場合には有効でないという欠点を有している。

本発明者らは、前記方法について詳細に検討したところ、高分子重合体の厚みがおよそ100 μm までが該方法の有効な範囲であり、約200 μm になると光学的に観察できるほどに球晶が成長し、約500 μm では表面から内部にいくほど大きな結晶となり、内部には数10 μm の大きさまで成長し

た球晶が、たがいに境界を接し合つて存在し、不均一な結晶構造を構成していることを知つた。

このような急冷結晶化方法については、他にも多くの報告がなされているが[例えば、「kunststoff (Kunststoffe)」第52巻、第535ページ(1962年)]、これらの方法は、いずれも前記と同様に薄いフィルムを得るにはよいが、厚いものを得るには不適當であるという欠点を有している。さらに、急冷を行わない方法として、例えばチン化ホウ素などの無機増核剤を添加することによつて、球晶そのものを小さくする方法が提案されている(ドイツ公開特許第2,058,126号明細書)。しかしながら、この方法によると、結晶化度が低下し、球晶をもはや偏光顕微鏡では観察されないほどに小さくすることもできるが、これに分子配向処理を加えると、増核剤を加えなかつたものに比べて、結晶性高分子重合体の特色が低下する傾向がみられる。

一方、従来、ポリアセタールに他の物質を加えて、該ポリアセタルの改質を行うことも試みら

れ、例えば、ポリアセタールコポリマーに、種類の異なつたポリアセタールコポリマーを加えることで、球晶を小さくし、耐衝撃性を改良する方法が提案されている(西ドイツ公開特許第2,142,091号明細書)。しかしながら、この方法においては、球晶サイズは8~90 μm 程度に小さくなるものの、まだ光学的に観察できる大きさであり、耐衝撃性の向上については必ずしも満足しうるものではない上に、コポリマーのため、たとえ分子配向処理を加えても、分子の立体規則性が劣り、引張弾性率や引張強度の著しい向上は期待できない。

ところで、最近、ポリアセタルの分子配向体については、高強度や高弾性率を必要とする分野における用途が考えられており、使用目的によつては、さらに高強度や高弾性率を必要とするために、ポリアセタルのより一層の改良が望まれているが、前記したように実用的な改善方法がまだ見い出されていない。

発明が解決しようとする問題点

本発明は、このような従来のポリアセタルの持つ欠点を克服し、優れた性質を有するポリアセタル成形材料、特に分子配向が容易で、高強度や高弾性率に優れた成形体を与えるポリアセタルの成形材料を提供することを目的としてなされたものである。

問題点を解決するための手段

本発明者らはさらに優れた性質を有する新規なポリアセタルの成形材料を開発するために鋭意研究を重ねた結果、ポリアセタルホモポリマーと、ポリアセタルコポリマーとを固溶させることによりその目的を達成しうることを見出し、この知見に基づいて本発明を完成するに至つた。

すなわち、本発明は、ポリアセタルホモポリマーと、ポリアセタルコポリマーとの固溶体から成る成形材料を提供するものである。

以下、本発明を詳細に説明する。

本発明の成形材料として用いられるポリアセタル固溶体を構成するポリアセタルホモポリマーは、例えばホルムアルデヒドをイオン重合開始

剤によつて重合させることによつて得られる熱可塑性重合体であつて、数平均分子量が15,000～200,000、好ましくは25,000～100,000の範囲にあり、かつMIが0.1～50、好ましくは0.5～30の範囲にあるものである。

一方、ポリアセタールコポリマーは、分子鎖に、1種又は2種以上のエーテルセグメント又はポリエーテルセグメントを有するポリオキシメチレンの共重合体であり、一般には、例えば環状エーテルと、1種又は2種以上のアルキレンオキシドとを共重合させるか、あるいは2種以上の環状エーテルを共重合させることによつて得ることができる。その代表例としては、エチレンオキシド・トリオキサン、ブチレンオキシド・トリオキサン、ジオキソラン・トリオキサンなどの共重合体が挙げられ、その数平均分子量が10,000～200,000、好ましくは20,000～100,000の範囲にあり、かつMIが0.1～50、好ましくは0.5～30の範囲にあるものが好適である。

該固溶体は、前記ポリアセタールホモポリマー

視光の波長以下、すなわち、実質的に1 μ m以下であり、また固溶体の断面を横切つて均一な結晶構造を示すものである。

さらに、該固溶体においては、DSCを用いて測定した熱挙動は、1つのピークを有する昇温曲線と、1つのピークを有する降温曲線を示す。該昇温曲線は、ホモポリマー及びコポリマーの示す曲線のいずれとも異なるし、またその両方を重ね合わせた曲線とも異なることから、該固溶体は、2成分の単なる混合物として存在するものではなく、熱的に均一な構造をもつものであることが分かる。

また、該固溶体の融点、結晶化温度、結晶化度、見掛け密度は、コポリマーの種類や含有量によつて異なるが、通常融点は173～179℃の範囲、結晶化温度は146～152℃の範囲、結晶化度は30～60%、好ましくは39～46%、見掛け密度は1.33～1.42g/cm³、好ましくは1.35～1.42g/cm³の範囲にある。さらにその機械的性質は、試験片の形状、寸法によつて異なるが、該固溶体は断面方向の寸法が大きくても、引張伸びが43

と、少なくとも1種の前記ポリアセタールコポリマーから成るものであつて、該ポリアセタールコポリマーの含有量は、固溶体の重量に基づき、通常0.1～30重量%の範囲で選ばれる。この量が0.1重量%未満では均一な固溶体が形成されにくいし、また30重量%を超えると配向処理を加えても引張弾性率や強度の著しい向上がみられない。本発明においては、均一な固溶体を形成することによつて無配向体の性能を改良すると共に、分子配向処理を加えることによつて、配向体の物性を向上させるために、ポリアセタールコポリマーの含有量は前記範囲が適当であるが、好ましい範囲は0.5～20重量%、特に1～10重量%の範囲である。

本発明の固溶体は結晶相と非晶相とから成る結晶性高分子重合体であつて、このものは、X線散乱測定により、結晶の長周期が測定されるが、クロスニコルを用いた偏光顕微鏡による球晶観察によれば、ラメラ集合体である球晶が認められ、その大きさは、実質的に5 μ m以下、好ましくは可

～50%、降伏応力が64～70MPaの範囲にあり、ホモポリマー単独の場合よりも優れている。また、その他の性質、例えば強靱性、耐衝撃性、耐久性、耐疲労性、寸法安定性などの点においても優れた性質を有する。

該固溶体は、分子配向が容易であつて、ホモポリマー単独の場合よりも延焼性が高く、より高強度、高弾性率のポリアセタール配向体を与える。例えば、引張強度及び引張弾性率は条件にもよるが、それぞれ2.5GPa及び70GPaにまで達することがあり、ホモポリマー単独の場合の最高値がそれぞれ2.0GPa及び60GPa程度であるのに比べて、著しく向上している。

このように、本発明における固溶体は著しく優れた性質を有するものであるが、その理由については、必ずしも明確ではないが、ホモポリマーとコポリマーとが、たがいに異物質として認識せず、ホモポリマーの分子間にコポリマー分子が強くとり込まれた形でラメラが形成され、このラメラは立体規則性の異なるコポリマーを含んでいるため

に、初期結晶化段階においても、その成長が抑制されて、極めて微細、かつ均一な結晶構造が形成されることによると推定される。また、結晶と結晶との境界が明確ではなく、たがいの分子を強い物理的結合力で共有する境界相が存在し、それは大きな球晶間に通常みられるような明確な境界線ではないために、延性、強靱性、衝撃強度などが向上するものと推定される。

本発明における固溶体とは、結晶相に他物質が溶け込んでいることが完全に証明されたものとは限らず、類似の組織構造及び物性をもつものを含めた広範囲のものを意味する。

該ポリアセタール固溶体を、成形材料として実際に使用する場合には、必要に応じて各種添加剤、例えば、紫外線吸収剤、酸化防止剤、難燃剤、油剤、滑剤、可塑剤、静電防止剤、着色剤、柔軟剤、表面改質剤あるいは各種の充填材、例えば、カーボンブラック、ウイスキー、カーボンファイバー、ガラス繊維、アラミド繊維、セラミックスなどを加えて、その目的とする性質を賦与することでも

の向上が認められ、さらに耐屈曲疲労性、耐久性、耐衝撃性、寸法安定性、熱収縮性、成形性などにも優れており、また、分子配向化することによつて得られる配向体においては、引張弾性率及び引張強度が著しく向上する上に、前記性質の多くが改良される。したがつて、本発明の成形材料は、例えば機械部品、パイプ、自動車部品、構造体、各種容器など、エンジニアリングプラスチックの用途や、高強度、高弾性率を必要とする分野の用途、具体的にはロープ、ケーブル、漁網、タイヤコード、ベルトの芯体などの各種の産業資材、光ファイバーのテンションメンバー、記録テープのベース、ガット、釣糸、各種の繊維強化複合体、さらには、コンクリート、樹脂、紙、木材、セラミックス、ゴム、エラストマー、皮革、ガラス、金属、などの各種材料との複合体などにおける成形材料として好適に用いられる。

実施例

次に実施例により本発明をさらに詳細に説明するが、本発明はこれらの例によつてなんら限定さ

きる。また、該固溶体は、丸棒、角棒、異形体、チューブ、パイプ、シート、板、テープ、フィルムなど任意の形状に加工することができる。

本発明における固溶体は、通常ホモポリマーと少なくとも1種のコポリマーとの混合物を溶融成形することによつて得ることができるが、もちろんこの方法に限定するものではなく、他の方法によつても得ることができ、その用途に応じて、各種、各様の方法を適宜選択すればよい。

発明の効果

本発明の成形材料はポリアセタールの固溶体から成るものであつて、この固溶体は、2種以上の異なる成分から成るポリアセタールでありながら、熱的に均一な結晶構造を有する結晶性高分子重合体であり、球晶が可視光で観察できないほど極めて微細な状態で均一に分布した結晶構造をとつており、これは従来得られなかつた新しい構造であるので、多くの優れた性質を見出すことができる。例えば、無配向体では伸度、降伏応力、曲げ強度、割れ強度などの機械的性質の向上やタフ性

れるものではない。

なお、各物性は次に示す方法に従つて求めた。

(1) 引張弾性率、引張強度、伸度、降伏応力 JIS K 7113-1981 に準じて、インストロン引張試験機で測定した。

また、引張弾性率及び引張強度の算出に必要な断面積は、一定長の試料の重量と、次の(4)で求めた密度とから計算した。

(2) 見掛け密度

JIS K 7112-1980 の浮沈法により、温度 $20 \pm 0.5^\circ\text{C}$ において測定した。

(3) 昇温曲線、降温曲線、融点、融解熱 DSC を用いて測定した。試料は約 5 mg を用い、昇温速度は $8^\circ\text{C}/\text{min}$ とした。また融点は昇温曲線におけるピークの所の温度とした。

(4) 結晶化度

前記の DSC で測定した融解熱から、完全結晶の融解熱を 59.6 cal/g として算出した。

(5) 結晶の微細構造

小角 X 線散乱測定装置によつて結晶の長周期を

測定した。

(6) 結晶の形状及び分布状態

成形材料を、その長手方向に対して直角にミクロトームでカットし、厚み8 μ mの超薄切片をつくり、これをクロスニコル下における偏光顕微鏡で観察した。

また、固溶体の配向化は、加圧したシリコンオイルの中で、材料を加圧しながら同時に引張延伸する方法（特開昭60-183122号公報）によつて行つた。すなわち、材料を流体中で加圧し、同時に引張応力を加え、材料の軟化点を超えない温度に加熱しながら、延伸倍率が1.0倍以上になるように引張り延伸する方法によつて行つた。

実施例1～7、比較例1、2

テナック3010〔旭化成工業株式会社登録商標名、融点179℃、見掛け密度1.42 g/cm^3 〕のペレットとジュラコンU10〔ポリプラスチック社登録商標名、トリオキサン-エチレンオキシド-ブチレンオキシド(96):(2):(2)のコ

ポリマー、MI=1.0 $\text{g}/10\text{min}$ 、融点159℃、見掛け密度1.41 g/cm^3 〕のペレットを、重量比で99.9:0.1、99.5:0.5、99:1、95:5、90:10、80:20、70:30の割合で均一に混合し、それぞれスクリー押出機を用いて190～200℃の温度で熔融押出し、直接に10℃の水で水冷して外径4.6mm/内径1.45mmのチューブを得た。

この成形体の熱挙動、融点、融解熱、結晶化度、結晶の長周期、結晶の構造、引張弾性率、引張強度、伸度、降伏応力、見掛け密度を測定した。その結果を第1表に示す。

また、テナック3010のみを用い、前記と同様の条件で成形体を作成し、各物性を求め、その結果も第1表に示した（比較例1）。さらにジュラコンU10のペレットについても各物性を求め、その結果を第1表に示した（比較例2）。

第 1 表

実験例	コポリマーの含有率(重量%)	融点(℃)	融解熱(Kcal/mol)	結晶化度(%)	結晶の長周期(Å)	結晶の構造	熱挙動	伸度(%)	降伏応力(Kg/cm ²)	見掛け密度(g/cm ³)
実施例1	0.1	179	27.2	45.6	178	第1図と同様	第3,4図と同様	43.3	660	1.42
2	0.5	179	27.3	45.8	179	同上	同上	43.7	660	1.42
3	1.0	178	27.5	46.1	179	同上	同上	44.3	662	1.42
4	5	177	27.7	46.4	207	同上	同上	45.3	677	1.42
5	10	177	28.8	48.4	209	同上	同上	46.0	683	1.42
6	20	175	28.7	48.2	210	同上	同上	46.2	680	1.42
7	30	173	27.0	45.3	208	同上		46.5	675	1.41
比較例1	0	179	27.3	45.8	177	第2図と同様	第5,6図と同様	43.3	659	1.42
2	100	159	23.9	40.1				52.0	655	1.41

第1図は、実施例1で得たチューブの断面の組織構造を示す偏光顕微鏡拡大写真図であり、(f)はチューブの外壁部分、(g)はチューブの内壁部分である。また第2図は比較例1で得たチューブの断面の組織構造を示す偏光顕微鏡拡大写真図であり、(f)はチューブの外壁部分、(g)はチューブの内壁部分である。これらの図から、実施例の固溶体は、結晶相と非晶相とから成る結晶性高分子重合体であり、結晶の長周期が比較例よりも大きいことが分かる。また、試料の断面を偏光顕微鏡で観察すると、第2図の比較例には、直径10 μ の球晶が観察されるのに対して、第1図の本発明固溶体には球晶がまったく観察されないことから少なくとも球晶の大きさが可視光の波長以下であることが分かる。また、比較例では、表面から内部に向うに従って球晶が大きく成長し、不均一な結晶構造をしているのに対して、本発明固溶体では、このような構造は観察されず、著しく均一な結晶構造を示していることが分かる。

第3図は、実施例で得られたポリアセタール固

まり、本発明固溶体は、これとは構造的に明らかに異なるものとして区別することができる。

実施例8～10、比較例4

実施例3、4、5で得たチューブ及び比較例1で得たチューブを同一条件で、加圧下、連続的に2段階で、延伸倍率20倍以上に引張延伸した。得られた配向体の引張弾性率、引張強度を第2表に示した。

第 2 表

実験例	コポリマーの含有率(%)	引張弾性率(GPa)	引張強度(GPa)	試料の種類
実施例 8	1.0	46	1.9	実施例3の試料
“ 9	5	46	2.0	実施例4 “
“ 10	10	46	1.9	実施例5 “
比較例 4	0	40	1.6	比較例1 “

溶体の昇温曲線、第4図は降温曲線を示すグラフであつて、熱挙動においてはいずれも1つのピークを有し、熱的に均一な結晶性高分子物質であることが分かる。

第5図は比較例1で得たポリアセタールの昇温曲線、第6図は同じく降温曲線を示すグラフである。

さらに、機械的性質においても、実施例の固溶体は比較例よりも優れていることが分かる。

比較例3

テナック3010のペレットを2枚の銅板ではさみ、200℃で熔融プレスし、ただちに0℃の氷水の中に入れて、毎分1500℃の冷却速度で冷却することによつて、厚みが100 μ のフィルムを得た。このフィルムの偏光顕微鏡観察写真を第7図に示した。この図から結晶が比較例1に比べて著しく小さいことが分かる。また、熱挙動は第8図に示したように、昇温曲線が2つのピークをもっており、これは急冷試料が結晶の形状、サイズなどが異なつた2種類の結晶構造を有することを示して

本発明の固溶体は、比較例に比べて、著しく引張弾性率、引張強度の向上した配向体になり、また、延伸倍率も、比較例に比べ、10～20%高い延伸倍率に到達し得た。

実施例11

テナック3010のペレットとジュラコンM25〔ポリプラスチック(髙製ポリアセタールコポリマーの登録商標名融点164℃、見掛け密度1.41g/cm³、MI=2.5)〕のペレットを重量比95:5に均一混合し、スクリー押出機で190～200℃で熔融押出し、直後に10℃の水で冷却し、外径4.6mm/内径1.45mmのチューブを得た。該チューブの結晶構造を、DSC、偏光顕微鏡によつて調べた。その結果、1つのピークをもつ昇温曲線を示し、偏光顕微鏡では、球晶は観察されなかつた。

実施例12

実施例11で得たチューブを実施例8～10と同様の条件で延伸し、配向体を得た。該配向体は、引張弾性率46GPa、引張強度2.0GPaを有し、

比較例4よりも著しく向上していた。

実施例13

テナック3010のペレットと、Hostaform CMA〔ヘキスト社製ポリアセタールコポリマーの登録商標名、 $MI = 13.5$ 〕、及びジュラコンU10をそれぞれ、重量比95:3:2に均一混合し、実施例11と同様な方法によつて、外径4.6mm/内径1.45mmのチューブを得た。該チューブのDSC、及び偏光顕微鏡による観察は、実施例11と同様であつた。

実施例14、比較例5

実施例13で得たチューブを実施例8～10と同様の条件で延伸し、配向体を得た。該配向体は引張弾性率460Pa、引張強度1.90Paを有し、比較例4よりも著しく向上していた。

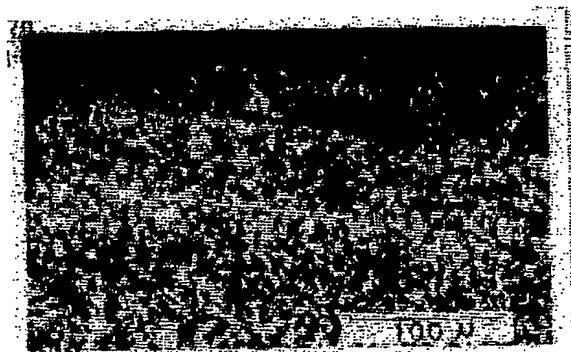
4. 図面の簡単な説明

第1図(イ)、(ロ)は実施例1のポリアセタール固溶体の組織構造を示す偏光顕微鏡写真図、第2図(イ)、(ロ)は、比較例1のポリアセタールの組織構造を示す偏光顕微鏡写真図、第3図及び第4図は実施例1のポリアセタール固溶体の熱挙動を示すグラフ、第5図及び第6図は比較例1のポリアセタールの熱挙動を示すグラフ、第7図は比較例3のポリアセタールの組織構造を示す偏光顕微鏡写真図、第8図は比較例3のポリアセタールの昇温曲線を示すグラフである。

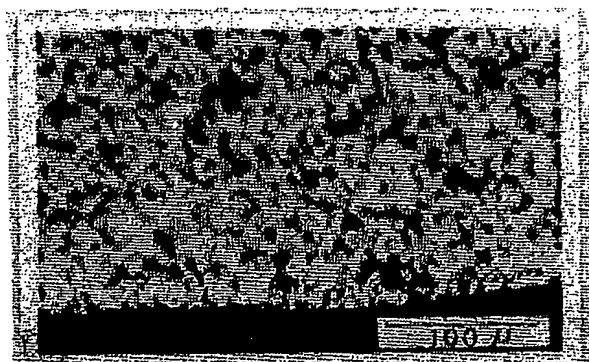
特許出願人 旭化成工業株式会社

代理人 阿形 明

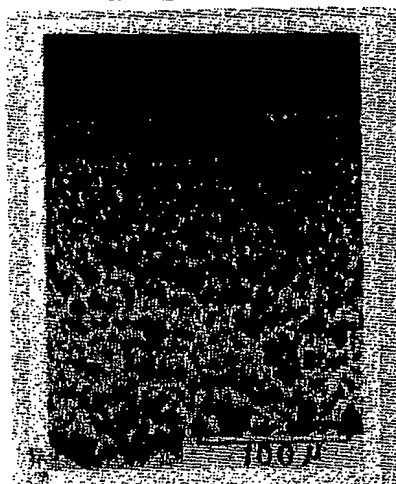
第1図(イ)



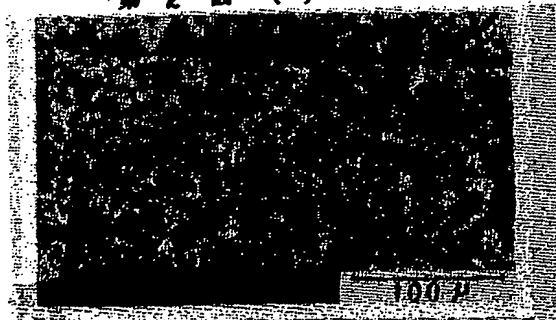
第1図(ロ)



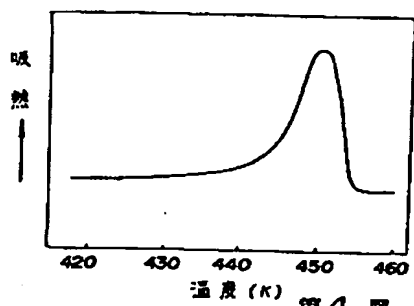
第2図(イ)



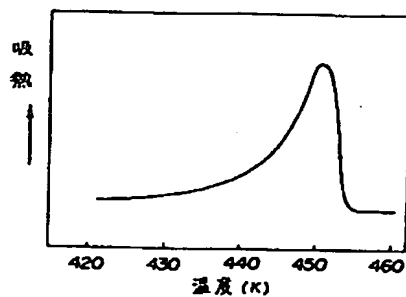
第2図(ロ)



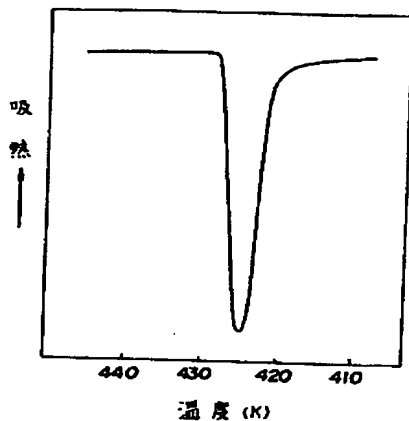
第3圖



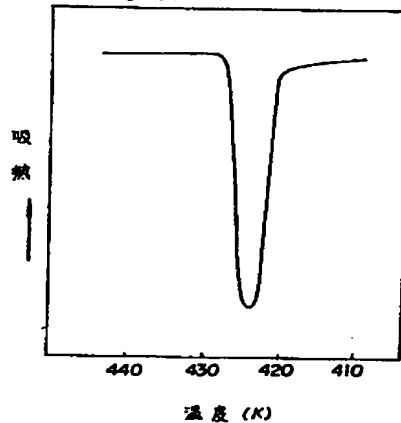
第5圖



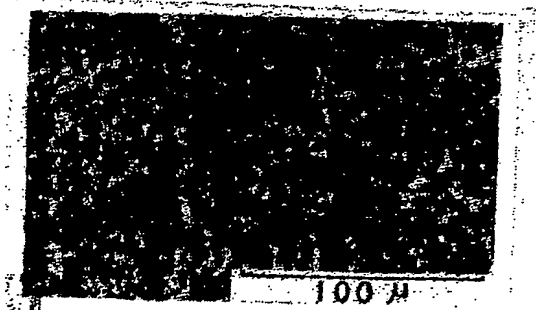
第4圖



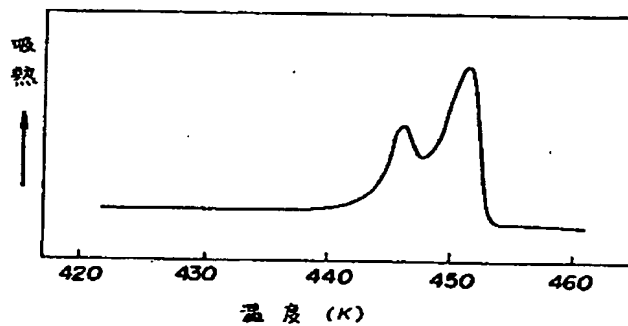
第6圖



第7圖



第8圖



手続補正書(方式)

昭和62年10月16日

特許庁長官 小川邦夫 殿

1. 事件の表示

昭和62年特許願第176308号

2. 発明の名称

ポリアセタール固溶体から成る成形材料

3. 補正をする者

事件との関係 特許出願人

大阪府大阪市北区堂島浜1丁目2番6号
(003)旭化成工業株式会社
代表者 世古真臣

4. 代理人

東京都港区新橋2丁目2番2号川志満・邦信ビル8階
(7182) 弁理士 阿形明
電話(591)9910番

5. 補正命令の日付 昭和62年9月2日

(発送日:昭和62年9月22日)

6. 補正により増加する発明の数 0

7. 補正の対象 明細書の発明の詳細な説明の欄
及び図面の簡単な説明の欄

8. 補正の内容

- (1) 明細書第18ページ第1~2行及び第5行の「組織構造」をそれぞれ「結晶構造」に訂正します。
- (2) 同第22ページ下より2行及び末行の「組織構造」をそれぞれ「結晶構造」に訂正します。
- (3) 同第23ページ第5行の「組織構造」を「結晶構造」に訂正します。



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.